

**ELECTROMAGNETIC-WAVE-SHIELDING RESIN COMPOSITION AND MOLDING
MADE THEREFROM**

Patent number: JP10204305
Publication date: 1998-08-04
Inventor: INOUE TAKESHI; MIZOGUCHI TAKASHI; KIMURA TAKAO; IWAFUNE KIYOTOSHI; KANEKO HIROAKI; KAMIYAMA HIROTERU
Applicant: COSMO SOGO KENKYUSHO KK;; COSMO OIL CO LTD
Classification:
- **international:** C08L101/12; C08K3/04; C08K3/08; C08K3/22; C08K7/04
- **europen:**
Application number: JP19970294919 19971013
Priority number(s): JP19970294919 19971013; JP19960329182 19961125

Abstract of JP10204305

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a low-cost composition reduced in the content of a conductive filler and improved in moldability and molding appearance, by adding the conductive filler to the island phase of a sea-island structure resin composition having a specified or higher volume resistivity and comprising at least two thermoplastic resins. **SOLUTION:** The resin composition having a volume resistivity of 10^{11} Ω cm or above is used. The constituent thermoplastic resins are exemplified by polyethylene, polypropylene, polystyrene, polymethyl methacrylate, polyether sulfone and polyetherimide. The conductive filler is exemplified by carbon black, graphite, carbon fibers a metal powder or metal oxide fibers. It is desirable that a compatibilizer such as an epoxy-modified styrene/styrene copolymer is used. It is desirable that the thermoplastic resins constitute 10-80vol.% of the island phase in a two-component thermoplastic resin system and constitute 5-80vol.% of the island phase in a three-component thermoplastic resin system.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-204305

(43) 公開日 平成10年(1998)8月4日

(51) Int.Cl.⁶
C 08 L 101/12
C 08 K 3/04
3/08
3/22
7/04

識別記号

F I
C 08 L 101/12
C 08 K 3/04
3/08
3/22
7/04

審査請求 未請求 請求項の数10 FD (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願平9-294919
(22) 出願日 平成9年(1997)10月13日
(31) 優先権主張番号 特願平8-329182
(32) 優先日 平8(1996)11月25日
(33) 優先権主張国 日本 (JP)

(71) 出願人 000130189
株式会社コスモ総合研究所
東京都港区芝浦1丁目1番1号
(71) 出願人 000105567
コスモ石油株式会社
東京都港区芝浦1丁目1番1号
(72) 発明者 井上 剛
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内
(72) 発明者 溝口 隆
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内
(74) 代理人 弁理士 高畠 靖世

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電磁波遮蔽性樹脂組成物、及び同組成物を用いた成形加工品

(57) 【要約】

【課題】 成形加工が容易で、精密、且つ外観の優れた成形品を得ることができると共に、十分な電磁波遮蔽性能を有する電磁波遮蔽性樹脂組成物、及び同組成物を用いた成形加工品を提供する。

【解決手段】 少なくとも2種の熱可塑性樹脂で海島構造を形成すると共に、不連続相である島側に、カーボンブラック等の導電性無機フィラーを偏在させる。該樹脂組成物の体積抵抗率は10¹¹Ω以上である。相溶化剤等の添加剤を更に配合してもよい。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも2種の熱可塑性樹脂と導電性フィラーとを主成分として含有してなる電磁波遮蔽性樹脂組成物において、前記樹脂組成物が $10^{11} \Omega \text{ cm}$ 以上の体積抵抗率の値を有し、且つ前記樹脂組成物が前記少なくとも2種の熱可塑性樹脂で構成した海島構造を有すると共に、前記島相に前記導電性フィラーを偏在させてなることを特徴とする電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項2】 少なくとも2種の熱可塑性樹脂と導電性フィラーと及び相溶化剤とを主成分として含有してなる電磁波遮蔽性樹脂組成物において、前記樹脂組成物が $10^{11} \Omega \text{ cm}$ 以上の体積抵抗率の値を有し、且つ前記樹脂組成物が前記少なくとも2種の熱可塑性樹脂で構成した海島構造を有すると共に、前記島相に前記導電性フィラーを偏在させてなることを特徴とする電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項3】 相溶化剤が、エポキシ変性スチレンースチレン共重合体、エポキシ変性スチレンーメチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレートスチレンーエチレン共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレートスチレンーメチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレートスチレン共重合体、及び無水マレイン酸-ビニル系共重合体からなる群から選ばれる少なくとも1種である請求項2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項4】 熱可塑性樹脂が、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルスルホン、及びポリエーテルイミドからなる群から選ばれる樹脂である請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項5】 2成分系熱可塑性樹脂合計量に対する島相の熱可塑性樹脂量が10～80容量%である請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項6】 3成分系熱可塑性樹脂合計量に対する島相の熱可塑性樹脂量が5～80容量%である請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項7】 導電性フィラーが、カーボンブラック、黒鉛、炭素繊維、金属粉、金属繊維、金属酸化物粉、及び金属酸化物繊維からなる群から選ばれる少なくとも1種の導電性フィラーである請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項8】 導電性フィラーの形状が、粉状、球状、又はアスペクト比が10以下の繊維状であり、その平均

粒径又は平均繊維径が $0.001 \sim 100 \mu\text{m}$ である請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項9】 熱可塑性樹脂と導電性フィラーとの合計量に対する導電性フィラーの含有量が1～50容量%である請求項1又は2に記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物。

【請求項10】 請求項1乃至9のいずれかに記載の電磁波遮蔽性樹脂組成物を成形加工してなる成型品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、Electro-magnetic Compatibility (EMC) 対応材料である電磁波遮蔽性樹脂組成物に関する。更に詳述すれば、本発明は電気通信機器システム、デバイス等が外部に放出する不要電磁波を遮蔽し、または外来する不要電磁波を遮蔽して電気通信機器システム、デバイス等を保護することにより、電気通信機器システム、デバイス等の誤動作等を防止する機能を有する電磁波遮蔽性樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】高度情報化社会を支える電気通信機器の発展は目覚ましく、多機能化やデジタル化が急速に進み、LSIの急増と情報量の増大、信号の高速化をもたらしている。その結果、電磁妨害波による機器の誤動作や破壊、さらに人体への悪影響等が問題となっており、これら問題を解決するために種々の対応策が検討されている。

【0003】対応策の一例として、従来電磁波を遮蔽する技術が検討されており、これに用いる電磁波遮蔽材料として、高分子材料に導電性を付与した導電性樹脂組成物が提案されている。上記導電性樹脂組成物は、高分子材料に、金属繊維、金属粉、炭素繊維、炭素粉等の導電性フィラーを混練して複合化したり、または導電性繊維を収束させ、その表面に熱加塑性樹脂を被覆した導電性樹脂組成物等を導電性フィラーとして複合化することにより製造されている。

【0004】特に繊維状、鱗片状等のアスペクト比の高い導電性フィラーや、粒子径の大きな導電性フィラーを多量に配合して複合化し、樹脂組成物の導通を図ることによって高い導電性を得ようとしている。ここで、アスペクト比とは、フィラーの形状において、短軸方向の長さに対する長軸方向の長さの比を表している。

【0005】更に、高導電性の導電性樹脂組成物を得る目的で、上述のような導電性フィラーを、樹脂マトリックス中に高濃度または高密度、若しくは均一に複合化する方法も多数提案されている。

【0006】しかし、これらの方法によれば、樹脂組成物の導電性は確かに向上するが、同時にその成形加工性は低下し、その結果得られる成形品の形状や、用途が限定され、更に成形加工性が低下するため得られる成形品の外観が悪くなる。このため、これら成形品が製品の外

面に組み込まれる場合には、表面塗装等の2次加工を要し、これは煩雑なものである。

【0007】導電性樹脂組成物の成形加工性を改善する目的で、樹脂マトリックス中の導電性フィラーの配合量を低減する方法も多数提案されている。特に特開昭62-4749号、特開平1-263156号、特開平2-113068号等は、互いに不完全相溶性の多成分系熱可塑性樹脂をマトリックスとして用い、また特開昭61-29470号等は互いに流動性、溶融流動性、または溶融温度の異なる多成分系熱可塑性樹脂をマトリックスとして用い、かつその樹脂マトリックスが海一島構造を形成するというモルフォロジーを利用し、導電性フィラーを配合する複合化において、該海一島構造における海側の連続相に導電性フィラーを偏在させることにより、連続相の導電性を高め、かつ樹脂組成物全体としての導電性を高め、導電性フィラーの配合量を低減させることを示している。

【0008】また、特開昭50-32240号、特開昭63-207855号等は、多成分系熱可塑性樹脂と導電性フィラーから構成され、かつ該多成分系熱可塑性樹脂が3次元網目構造を形成し、かつ該導電性フィラーが3次元網目構造を形成している該多成分系熱可塑性樹脂中で、特定の樹脂成分中に偏在させることにより、効率的な導通経路を形成させ、従来と同等の導電性フィラーラー量で、より導電性の高い樹脂組成物を得ること、または従来よりも少ない導電性フィラーラー量で、従来と同等もしくはそれ以上の高い導電性を有する樹脂組成物を得る技術を開示している。

【0009】しかし、このような従来の電磁波遮蔽性樹脂組成物に関する技術は、導電性フィラーを樹脂に配合して樹脂組成物の導電性を向上させ、これにより電磁波遮蔽性能を付与するものであることから、樹脂マトリックス中へ配合する導電性フィラーラー量を低減させる程度には、自ずと限界がある。

【0010】従って、導電性フィラーラーの配合量は依然として多量であることを要し、このため上記従来技術による導電性樹脂組成物は、成形加工性または外観不良性に關し、本質的な改善には至ってはおらず、上述のような導電性樹脂組成物による電磁波遮蔽性樹脂組成物は、依然としてその電磁波遮蔽性能が不十分であるか、または成形加工性等が不十分であり、実用上問題が多い。

【0011】一方、特開平8-64986号、特開平8-67544号、特開平8-83992号、特開平8-105188号、特開平8-111594号等は、樹脂、セメント、軽量骨材等のマトリックス中に、カーボン繊維、フェライト粉末等を配合して複合化することにより、またはその複合化材料を、上述のマトリックス中で層状に組み込み、これに電磁波があたると誘電損失または磁性損失が生じることを利用する電波吸収体なるものを提案している。

【0012】しかし、これらの電波吸収体は、金属板やフェライトタイル等と組み合わせ、また、ピラミッド型に成形するなどして、建材として用いられるものであり、表面平滑性または成形加工性を要求される電気通信機器等の筐体、デバイス等には到底用いることはできない。

【0013】従って、以上説明したように、十分な電磁波遮蔽性能と、高度な表面平滑性を要求される精密成形品を製造することのできる優れた成形加工性とを同時に有する電磁波遮蔽性樹脂組成物はこれまで提案されていない。

【0014】このため、電気通信機器等の電磁波遮蔽が必要な製品部位の電磁波遮蔽は、その製品部位を覆う樹脂組成物表面にメタライジング（金属のメッキ、蒸着、溶射、導電性塗料の塗布等）処理を施すことに頼っているのが現状であり、この処理によれば電磁波遮蔽性は十分であるものの、作業性に問題があり、更に得られた製品の処理部分の物理的、化学的安定性等にも問題がある。また更に、樹脂組成物表面に対するメタライジング処理自体が2次的な加工であることから、そのランニングコスト、原料コスト等を含めると、製品価格における電磁波遮蔽に要するコストの占める割合が非常に高いものになる。

【0015】

【発明が解決しようとする課題】本発明者等は上記諸問題を解決しようとするものであって、その目的とするところは、電磁波遮蔽性樹脂組成物を構成する導電性フィラーの配合量を低減でき、該樹脂組成物製造の際、または該樹脂組成物を用いた成形品加工の際においては、該樹脂組成物の流動不良、ひび割れ、表面の凹凸、そり等の発生もなく、通常の成形加工条件で精密、且つ外観の優れた成形品を得ることができ、しかも十分な電磁波遮蔽性能を有する絶縁性の電磁波遮蔽性樹脂組成物、及びこれを用いた成形品を提供することにある。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、熱可塑性樹脂と導電性フィラーとを複合化する技術について、成形加工性に於ける欠点を解決すべく鋭意検討を行った結果、多成分系熱可塑性樹脂マトリックスに、導電性フィラーを不均一に分散させることにより、更に詳述すれば該多成分系熱可塑性樹脂マトリックスが連続相および不連続相からなる海一島構造を形成し、かつ該導電性フィラーを、該海一島構造における島側の不連続相へ偏在させることにより、該導電性フィラーの配合量を低減でき、かつ従来問題であった困難な成形加工性、外観不良、高コスト等の欠点を改善した電磁波遮蔽性樹脂組成物が得られることを見出し本発明を完成するに至った。

【0017】即ち、本発明は、少なくとも2種の熱可塑性樹脂と導電性フィラーとを主成分として含有してなる電磁波遮蔽性樹脂組成物において、前記樹脂組成物が1

$0^{11}\Omega\text{cm}$ 以上の体積抵抗率の値を有し、且つ前記樹脂組成物が前記少なくとも2種の熱可塑性樹脂で構成した海一島構造を有すると共に、前記島相に前記導電性フィラーを偏在させてなることを特徴とする電磁波遮蔽性樹脂組成物を提案するものである。

【0018】また、本発明は、少なくとも2種の熱可塑性樹脂と導電性フィラーと及び相溶化剤とを主成分として含有してなる電磁波遮蔽性樹脂組成物において、前記樹脂組成物が $10^{11}\Omega\text{cm}$ 以上の体積抵抗率の値を有し、且つ前記樹脂組成物が前記少なくとも2種の熱可塑性樹脂で構成した海一島構造を有すると共に、前記島相に前記導電性フィラーを偏在させてなることを特徴とする電磁波遮蔽性樹脂組成物を提案するものである。

【0019】更に、本発明は、上記の電磁波遮蔽性樹脂組成物を成形加工してなる成型品を提案するものである。

【0020】

【発明の実施の形態】本発明の樹脂組成物は多成分系熱可塑性樹脂マトリックス中における導電性フィラーの分散性を制御することにより、電磁波遮蔽性能を著しく高めると共に、良好な成形加工性を発揮させるものである。この点につき更に詳述すると、本発明の樹脂組成物の電磁波遮蔽性能は、該樹脂組成物中に不連続相として偏在化した導電性部位を形成し、これによる電磁波の反射と吸収、及び該樹脂組成物の誘電損失または磁性損失による電磁波の吸収を行わせて電磁波を遮蔽するものであり、このような概念に基づく電磁波遮蔽性樹脂組成物は、本発明者らの知る限りに於いて、従来提案されていない。

【0021】本発明の樹脂組成物の体積抵抗率の値は、 $10^{11}\Omega\text{cm}$ 以上であり、上限値は、樹脂組成成分単独の体積抵抗率の値にほぼ等しいものであれば良いが、一般に $10^{13}\sim10^{18}\Omega\text{cm}$ である。これは絶縁性の領域であり、従ってその用途は絶縁性であることが要求される製品部位にも広がる。即ち、本発明樹脂組成物は従来から電磁波遮蔽用筐体等として用いられている導電性樹脂組成物、または前述のような表面にメタライジングを伴う、または場合によっては精密成形も伴うような部位に用いられている樹脂組成物等の代替が可能である。

【0022】更に、本発明樹脂組成物は絶縁性で電気を通さないので、導電性部位と絶縁性部位とを区分けする必要がなく、従って電磁波遮蔽性が要求される部位と絶縁性が要求される部位の両者が存在する部位に対しても個別に組み込むことなく、本発明の材料による一体成形品を組み込むことができ、製造、保守等が簡単になる利点がある。

【0023】従来の導電性樹脂組成物のシールド効果は $20\sim60\text{dB}$ の値を示す場合が一般であるが、本発明の電磁波遮蔽性樹脂組成物も従来の樹脂組成物とほぼ同様のシールド効果の値を示すものである。

【0024】以下、本発明を詳細に説明する。

【0025】本発明で用いる熱可塑性樹脂は、ポリエチレン(PE)、ポリプロピレン(PP)、ポリスチレン(PS)、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、アクリロニトリルバタジエンスチレン(ABS)共重合体、ポリアセタール(POM)、ポリカーボネート(PC)、ポリフェニレンエーテル(PPE)、変性ポリフェニレンエーテル(m-PPE)、ポリアミド(PA:ナイロン)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、ポリフェニレンスルフィド(PPS)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド(PEI)の中から選ばれる2種以上のものが好ましく、これらの樹脂を組み合わせ、またはこれらの樹脂と導電性フィラーとを組み合わせた場合、海一島構造を形成するものである。

【0026】さらに、本発明で用いる熱可塑性樹脂には、樹脂の基本的な性能、例えば機械的特性、電気的特性、耐熱性、成形加工性、流動性または溶融流動性、難燃性、耐紫外線性、耐薬品性、あるいは着色、光沢付与等の目的で適宜各種添加剤が配合されてもよい。

【0027】具体的な添加剤の例としては、可塑剤、熱安定剤、フェノール系または硫黄系などの酸化防止剤、安定剤、架橋剤、難燃化剤、紫外線吸収剤、中和剤、滑剤、着色剤、光沢付与剤等が挙げられる。

【0028】本発明において、後述する導電性フィラーを偏在させる多成分系樹脂は、前記熱可塑性樹脂の2種以上からなる多成分系熱可塑性樹脂である。

【0029】2成分系熱可塑性樹脂としての好ましい熱可塑性樹脂成分の組み合わせの例としては、m-PPE/PE、m-PPE/PP、m-PPE/PMMA、m-PPE/POM、PC/PS、PC/PE、PC/PP、PC/ABS、PC/PMMA、PC/POM、m-PPE/PEI、m-PPE/PBT、m-PPE/PC、m-PPE/PES、m-PPE/LCP、PEI/PBT、PEI/PC、PEI/PES、PEI/LCP、PBT/PES、PC/PES、PC/LCP、PES/LCP、m-PPE/PA、m-PPE/PET、m-PPE/PPS、PEI/PET等が挙げられる。

【0030】その配合比としては2成分系熱可塑性樹脂の全量を100容量%としたとき、該2成分系熱可塑性樹脂の海一島構造における島側の不連続相を形成させようとする樹脂成分が10容量%以上が好ましく、より好ましくは20容量%以上である。

【0031】10容量%より少ないと、後述する所望量の導電性フィラーを分散させることが困難となり、電磁波遮蔽性と優れた成形加工性とを同時に有する樹脂組成物が得られない場合がある。

【0032】また、3成分系熱可塑性樹脂としての好ましい熱可塑性樹脂成分の組み合わせの例としては、m-

PPE/PE/PC、m-PPE/PP/PC、m-PPE/PMMA/PC、m-PPE/POM/PC、PC/PS/PMMA、PC/PE/PMMA、PC/PP/PMMA、PC/ABS/PMMA、PC/POM/PMMA、m-PPE/PEI/LCP、m-PPE/PBT/LCP、m-PPE/PC/LCP、m-PPE/LCP、PEI/PBT/LCP、PEI/PC/LCP、PEI/PES/LCP、PBT/PES/LCP、PC/PES/LCP、m-PPE/PEI/PBT、m-PPE/PBT/PC、m-PP-E/PC/PES、PEI/PBT/PC、PBT/PC/PES等が挙げられる。

【0033】その配合比としては、3成分系熱可塑性樹脂の全量を100容量%としたとき、該3成分系熱可塑性樹脂の海一島構造における島側の不連続相を形成させようとする樹脂成分が5容量%以上が好ましく、より好ましくは10容量%以上である。

【0034】5容量%より少ないと、上述の2成分系熱可塑性樹脂の場合と同様の理由で、電磁波遮蔽性と、優れた成形加工性とを同時に有する樹脂組成物が得られない可能性がある。

【0035】さらに、本発明の樹脂組成物の海一島構造における島側の不連続相を形成させようとする樹脂成分の配合量は、樹脂成分全量に対し、80容量%以下、好ましくは75容量%以下、より好ましくは50容量%以下である。

【0036】80容量%よりも多い場合、海一島構造における島相を形成しないか、または島相を形成したとしても、島相が互いに接近または接触することにより、実質的に連続相になる可能性があり、また樹脂全体として海一島構造における島相が連続相を形成する可能性があり、また樹脂組成物全体として、体積抵抗率の値が $10^{11}\Omega\text{cm}$ よりも小さくなる場合がある。

【0037】4成分系以上の多成分系樹脂組成物においても、上記と同様の考え方が適用でき、これらも本発明に包含されるものである。

【0038】また本発明の樹脂組成物には、電磁波遮蔽性等の電気特性を低下させない範囲で、種々の一般的な相溶化剤を添加してもよい。

【0039】相溶化剤の例としては、エポキシ変性スチレン-スチレン共重合体、エポキシ変性スチレン-メチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレート-スチレン-エチレン共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレート-メチルメタクリレート-エチレン共重合体、スチレン-メチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレート-メチルメタクリレート共重合体、エポキシ変性メチルメタクリレート-スチレン共重合体、及び無水マレイン酸-ビニル系共重合体等が挙げられる。

【0040】但し、ここで言う共重合体とは、ランダム

共重合体、ブロック共重合体、交互共重合体及びグラフト共重合体等を指す。また、ビニルモノマーとしては、スチレン、エチレン、プロピレン、塩化ビニル、酢酸ビニル、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル等が挙げられる。

【0041】一般に、ポリマーアロイによる樹脂組成物は、相溶化剤を添加することによって、導電性フィラーを含めた多成分系熱可塑性樹脂の構成成分の分散性が向上し、成形加工性、機械的強度、耐熱性等が改善される。

【0042】本発明の樹脂組成物に対し相溶化剤を添加する場合、その配合量は、電磁波遮蔽性等の電気特性の低下しない範囲で任意に選択できるが、少な過ぎると、上述のような効果が得られず、また、必要以上の配合量は経済性において不利である。

【0043】したがって、樹脂組成物全量を100重量部としたとき、0.01~20重量部が好ましく、特に0.1~10重量部であることがより好ましい。

【0044】本発明において用いる導電性フィラーは、公知の導電性を有する導電性フィラーが利用できる。

【0045】導電性フィラーの例としては、オイルファーネス法、ガスファーネス法、チャンネル法、サーマル法等の各製法によって製造されるカーボンブラック、アセチレンを原料としたアセチレンブラック、天然黒鉛、無定型炭素を約2000°C以上の高温で処理して製造される人工黒鉛、アクリル系合成繊維(PAN繊維)やセルロース系繊維(レーヨン)または石油ピッチや石炭ピッチを溶融紡糸したピッチ繊維などを原料としてこれを約800°C以上の温度で処理して得られる炭素繊維、更にこれを約2000°C以上の高温で処理して得られる黒鉛繊維等の炭素系フィラー、金、銀、銅、鉄、白金、スチール、アルミニウム、パラジウム等の金属系導電性フィラー、酸化亜鉛、酸化錫、酸化インジウム、酸化チタン等の金属酸化物系導電性フィラー、また各種無機フィラーの表面を、上述のような導電性の素材でコートした導電被覆型フィラー等が挙げられる。

【0046】本発明に用いる導電性フィラーの形状は、粉状、球状、またはアスペクト比が10以下、好ましくは5以下の短繊維であり、かつ平均粒径、または平均繊維径が0.001~100μmのものが好ましく、より好ましくは0.001~10μmであり、特に好ましくは0.01~1μmである。

【0047】アスペクト比が10よりも大きい場合、または平均粒子径が100μmよりも大きい場合、前記多成分系熱可塑性樹脂マトリックスへの導電性フィラーの偏在化分散が困難となるばかりでなく、組成物の成形加工性や成形品の外観等を損ねる場合がある。

【0048】また、平均粒子径が0.001μmより小さい場合、このような導電性フィラーを工業的に得るこ

とは現状では困難で、経済性に問題がある他、嵩比重が低くなるため、熱可塑性樹脂への所望量の複合化やハンドリングが困難となる可能性がある。

【0049】なお、導電性フィラー形状が粉状であるとは、導電性フィラーが定まった形状を持たない粒子の集合であって上記条件に適合するものをいう。

【0050】導電性フィラーの配合量は、熱可塑性樹脂と該導電性フィラーとの合計容量に対して1～50容量%とすることが好ましく、より好ましくは2～35容量%であり、特に2～20容量%とすることが好ましい。

【0051】該導電性フィラーの配合が1容量%未満の場合、十分な電磁波遮蔽性を得られない場合がある。

【0052】また50容量%を越える場合、樹脂組成物の製造が困難になったり、得られる樹脂組成物における該導電性フィラーを含む多成分系熱可塑性樹脂の海一島構造において、該導電性フィラーを島側の不連続相へ偏在させることができ難となり、該樹脂組成物の成形加工性が悪くなるばかりか、該樹脂組成物の体積抵抗率の値が $10^{11}\Omega\text{cm}$ より低くなる場合がある。

【0053】また、成形加工性等の物性を低下させることのない範囲内で、他の無機フィラーまたは有機フィラーを併用してもよい。使用可能な無機フィラーの例としては、炭酸カルシウム、タルク、マイカ、ガラス、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、二硫化モリブデン、アルミナ、シリカ、ボロン、ジルコニア、及びFe—Al合金、Fe—Si合金、Fe—Si—Al合金のセンドスト、Ni—Fe合金またはこれにMo、Cu、Cr等を添加した多元系合金のパーマロイ、一般式 $\text{MO}\cdot\text{Fe}_2\text{O}_3$ なる組成をもつ一群の鉄酸化物であるフェライト (MはBa、Sr、Pb、Mn、Fe、Co、Ni、Zn等の2価の金属イオン) 等、また有機フィラーとしては木粉等が挙げられる。

【0054】これらの無機フィラーまたは有機フィラーを添加することにより、成形加工性、機械的強度、耐熱性等が改善される。

【0055】本発明においては、上記少なくとも2種類の熱可塑性樹脂と、導電性フィラーとを以下に示す方法により複合化することにより、少なくとも2種の熱可塑性樹脂による海一島構造が形成されると共に、配合された導電性フィラーが島相に偏在される。

【0056】導電性フィラーが島相に偏在する程度は、島相の樹脂組成物中における導電性フィラーの容量%の値が、海相の樹脂組成物中における導電性フィラーの容量%の値よりも大きくあればよく、好ましくは配合された導電性フィラーの少なくとも50%以上が島相に含有されていることが望ましく、特に70～100%が島相に含有されていることがより好ましい。

【0057】前述した導電性フィラーが偏在する程度の評価方法としては、樹脂組成物中の樹脂成分や導電性フィラーの成分の分布状態を、さらに詳しくは含有してい

る元素の分子レベルでの分布状態を評価する方法が挙げられる。

【0058】具体的には、走査型電子顕微鏡(SEM)や走査型プローブ電子顕微鏡(SPM)により構成成分の種類や分布状態(海一島構造)に関する情報を得ることができる。更に詳しくは、X線マイクロアナライザー(XMA)や電子線マイクロアナライザー(EPMA)により、樹脂組成物を構成する各元素の分布状態に関する情報を得ることができる。

【0059】このような分析方法で得られた情報をもとに、肉眼で観察するか、または粒子解析用の画像処理システムを用いて、導電性フィラー粒子の大きさを考慮しながら粒子の数を数えることにより、評価することができる。

【0060】本発明の電磁波遮蔽性樹脂組成物は各種の製造方法で製造できるが、次に例示する方法によることが好ましい。

(1) 第1段階として、熱可塑性樹脂に導電性フィラーを複合化した樹脂組成物を得、その後第2段階として、該樹脂組成物と、該樹脂組成物に供していない異なる種類の熱可塑性樹脂とを複合化する方法。

(2) 上記の第1段階及び第2段階の複合化を、同一の系において1段階で行う方法。

【0061】ここで同一の系とは、後述の一般的な製造装置、例えば1台の2軸混練押出機において、上述の第1段階及び第2段階の複合化が、異なる原料投入口より行われる場合、または同一の原料投入口より行われる場合である。

【0062】本発明の樹脂組成物は、一般的な複合材料製造技術を利用して製造することができる。工業的には溶融混練法で製造することが、生産性及び経済性の面で好ましい。

【0063】具体的には、2軸押出機や単軸押出機を用いた連続混練による製造、ラボプラスミルに代表されるバッチ式の加熱溶融混練機による製造が挙げられる。

【0064】また本発明の樹脂組成物は、熱可塑性であるので、射出成形、押出成形、プレス成形等の成形加工が可能である。

【0065】本発明の樹脂組成物は、以上例示したような構成、及び製造法によって得られ、従来の電磁波遮蔽性樹脂組成物において問題であった、成形加工の困難性、成形加工品の外観不良、高コスト等の欠点を解決した、特定のモルフォロジーを有する電磁波遮蔽性樹脂組成物である。

【0066】以下、実施例、比較例により、本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

【0067】尚、原料の熱可塑性樹脂、及び前述の第2段階の複合化に供する第1段階の複合化で得られる熱可塑性樹脂組成物は、2軸押出機等の混練装置への供給に

先立って、水分除去のために予備乾燥を行うことが好ましい。

【0068】

【実施例】以下の実施例、及び比較例において用いた熱可塑性樹脂、導電性フィラーは、次に示す通りである。

【0069】<使用熱可塑性樹脂>

・PPE：変性ポリフェニレンエーテル 旭化成工業（株）製 商品名「ザイロン100V」
比重 (ASTM D 792) 1.07 g/cm³
・PEI：ポリエーテルイミド 日本GEプラスチックス（株）製 商品名「ウルテム1000」
比重 (ASTM D 792) 1.27 g/cm³
・PBT：ポリブチレンテレフタレート ポリプラスチックス（株）製 商品名「ジュラネックス2072」
比重 (ASTM D 792) 1.41 g/cm³
・PC：ポリカーボネート 帝人化成（株）製 商品名「パンライトL1250」、数平均分子量25000
比重 (ASTM D 792) 1.20 g/cm³
・PES：ポリエーテルスルホン 住友化学工業（株）製 商品名「スミカエクセル3600G」、数平均分子量56000～57000
比重 (ASTM D 792) 1.37 g/cm³
・LCP：液晶ポリエスチル ユニチカ（株）製 商品名「ロッドランLC-5000」。

【0070】比重 (ASTM D 792) 1.41 g/cm³。

【0071】<使用導電性フィラー>

・カーボンブラック
平均粒径0.03 μm、球状 以下、CBと略記する
・金属系（銀）導電性フィラー
平均粒径0.4 μm、球状 以下、AGと略記する
・金属系（鉄）導電性フィラー
平均粒径4.5 μm、粉状 以下、FHと略記する
・導電被覆型導電性フィラー
(硫酸バリウムを核とし、その表面に酸化錫系導電層を

被覆したもの)

平均粒径0.4 μm、球状 以下、BSと略記する

・導電性炭素繊維

平均繊維径 0.8 μm、繊維状、アスペクト比 8 以下、CSと略記する。

【0072】<使用相溶化剤>

・エポキシ変性スチレン (St) -St共重合体 東亜合成化学工業（株）商品名「RESEDA GP-500」

以下ESSと略記する

・エポキシ変性St-メチルメタクリレート (MMA) 共重合体

東亜合成化学工業（株）商品名「RESEDA GP-300」

以下ESMと略記する

・エポキシ変性MMA-St-Et共重合体

日本油脂（株）商品名「Modiper A-4100」

以下EMSEと略記する

・St-無水マレイン酸共重合体

エム・ティ・シー・アーコ（株）商品名「DYLAR K 232」

以下SMAと略記する

・エポキシ変性MMA-MMA-Et共重合体

日本油脂（株）商品名「Modiper A-4200」

以下EMMEと略記する

・St-MMA共重合体

東亜合成化学工業（株）商品名「RESEDA GP-200」

以下SMと略記する。

【0073】表1に、実施例1～67、及び比較例1～5における各樹脂組成物の組成を示す。

【0074】

【表1】

表1

実施例	熱可塑性樹脂		導電性フィラー (種類/重量部)	相容化剤 (種類/重量部)		
	A	B		C	a	b
実施例1	PPE/26.4	PEI/70.0			CB/3.6	
実施例2	PEI/26.4	PPE/70.0			CB/3.6	
実施例3	PPE/16.0	PEI/60.0			AG/24.0	
実施例4	PEI/16.0	PPE/60.0			AG/24.0	
実施例5	PPE/20.0	PEI/50.0			BS/30.0	
実施例6	PEI/20.0	PPE/50.0			BS/30.0	
実施例7	PPE/25.2	PEI/70.0			CS/4.8	
実施例8	PEI/25.2	PPE/70.0			CS/4.8	
実施例9	PPE/20.0	PEI/50.0			EH/30.0	
実施例10	PEI/20.0	PPE/50.0			EH/30.0	
実施例11	PPE/26.4	PC/70.0			CB/3.6	
実施例12	PC/27.6	PPE/70.0			CB/2.4	
実施例13	PPE/16.0	PC/60.0			AG/24.0	
実施例14	PC/16.0	PPE/60.0			AG/24.0	
実施例15	PPE/20.0	PC/50.0			BS/30.0	
実施例16	PC/20.0	PPE/50.0			BS/30.0	
実施例17	PPE/25.2	PC/70.0			CS/4.8	
実施例18	PC/25.2	PPE/70.0			CS/4.8	
実施例19	PPE/20.0	PC/50.0			EH/30.0	
実施例20	PC/20.0	PPE/50.0			EH/30.0	

【0075】

【表2】

(表1の続き)

実施例21 PPE/26.4	PBT/70.0	CB/3.6
実施例22 PBT/26.4	PPE/70.0	CB/3.6
実施例23 PPE/26.4	PES/70.0	CB/3.6
実施例24 PES/26.4	PPE/70.0	CB/3.6
実施例25 PEI/26.4	PC/70.0	CB/3.6
実施例26 PC/26.4	PEI/70.0	CB/3.6
実施例27 PEI/16.0	PC/60.0	AG/24.0
実施例28 PC/16.0	PEI/60.0	AG/24.0
実施例29 PEI/20.0	PC/50.0	BS/30.0
実施例30 PC/20.0	PEI/50.0	BS/30.0
実施例31 PEI/25.2	PC/70.0	CS/4.8
実施例32 PC/25.2	PEI/70.0	CS/4.8
実施例33 PEI/20.0	PC/50.0	FH/30.0
実施例34 PC/20.0	PEI/50.0	FH/30.0
実施例35 PEI/26.4	PBT/70.0	CB/3.6
実施例36 PBT/26.4	PEI/70.0	CB/3.6
実施例37 PEI/26.4	PES/70.0	CB/3.6
実施例38 PES/26.4	PEI/70.0	CB/3.6
実施例39 PC/26.4	PES/70.0	CB/3.6
実施例40 PES/26.4	PC/70.0	CB/3.6

【0076】

【表3】

(表1の続き)

実施例41 PBT/26.4	PES/70.0	CB/3.6
実施例42 PES/26.4	PBT/70.0	CB/3.6
実施例43 PPE/44.0	PEI/50.0	CB/6.0 ESS/1.0
実施例44 PPE/61.6	PEI/30.0	CB/8.4 ESS/5.0
実施例45 PPE/28.0	PEI/30.0	AG/42.0 ESS/5.0
実施例46 PPE/44.0	PC/50.0	CB/6.0 ESM/5.0
実施例47 PC/46.0	PPE/50.0	CB/4.0 ESM/1.0
実施例48 PC/28.0	PPE/30.0	AG/42.0 ESM/1.0
実施例49 PES/44.0	PPE/50.0	CB/6.0 EMSE/1.0
実施例50 PES/61.6	PPE/30.0	CB/8.4 EMSE/5.0
実施例51 PEI/44.0	PC/50.0	CB/6.0 EMME/1.0
実施例52 PEI/61.6	PC/30.0	CB/8.4 SMA/5.0
実施例53 PC/28.0	PEI/30.0	AG/42.0 SMA/1.0
実施例54 PES/44.0	PEI/50.0	CB/6.0 SM/1.0
実施例55 PPE/26.4	PEI/50.0	LCP/20.0 CB/3.6
実施例56 PPE/26.4	PEI/50.0	PBT/20.0 CB/3.6
実施例57 PPE/26.4	PC/50.0	LCP/20.0 CB/3.6
実施例58 PPE/26.4	PES/50.0	LCP/20.0 CB/3.6
実施例59 PPE/26.4	PES/50.0	PBT/20.0 CB/3.6
実施例60 PC/26.4	PEI/35.0	LCP/20.0 CB/3.6

【0077】

【表4】

(表1の続き)

実施例61 PC/26.4	PEI/35.0	PPE/35.0	CB/3.6
実施例62 PEI/26.4	PES/50.0	LCP/20.0	CB/3.6
実施例63 PEI/26.4	PES/50.0	PBT/20.0	CB/3.6
実施例64 PEI/26.4	PES/35.0	PPE/35.5	CB/3.6
実施例65 PC/26.4	PES/50.0	LCP/20.0	CB/3.6
実施例66 PC/26.4	PES/50.0	PBT/20.0	CB/3.6
実施例67 PC/26.4	PES/35.0	PPE/35.0	CB/3.6
比較例1 PPE/88.0		CB/12.0	
比較例2 PEI/88.0		CB/12.0	
比較例3 PC/88.0		CB/12.0	
比較例4 PBT/88.0		CB/12.0	
比較例5 PES/88.0		CB/12.0	

実施例1～4 2

表1に示す熱可塑性樹脂Aと、導電性フィラーaとを、所定の組成比で、2軸混練押出機（ベルストルフ社製「ZE 40A；スクリュー径43mm、スクリュー長径比33.5」）を用いて、加熱溶融混練し、水冷、または空冷後、ペレタイザーによりストランドを切断してペレット化した。（複合化第1段階）その後、複合化第1段階で得られた混練樹脂と、熱可塑性樹脂Bとを、所定の組成比でプリブレンドし、該プリブレンド調製品を、複合化第1段階と同様に、加熱溶融混練し、水冷、または空冷後、ペレタイザーによりストランドを切断してペレット化し、本発明の樹脂組成物を得た。（複合化第2段階）なお、押出機等の操作条件の選定は常法に従って適宜行った。

【0078】実施例4 3～5 4

表1に示す熱可塑性樹脂Aと、導電性フィラーaとを、所定の組成比で、実施例1～4 2の複合化第1段階と同様の方法でペレット化した。（複合化第1段階）その後、複合化第1段階で得られた混練樹脂に、熱可塑性樹脂Bを添加し、構成する全熱可塑性樹脂を基準にして、所定の組成比で相溶化剤を添加し、本発明の樹脂組成物を得た。

【0079】実施例5 5～6 7

表1に示す熱可塑性樹脂Aと、導電性フィラーaとを、所定の組成比で、実施例1～4 2の複合化第1段階と同様の方法でペレット化した。（複合化第1段階）その後、複合化第1段階で得られた混練樹脂と、熱可塑性樹脂B、熱可塑性樹脂Cとを、所定の組成比でプリブレンドし、複合化第1段階と同様に、加熱溶融混練し、水冷、または空冷後、ペレタイザーによりストランドを切断してペレット化し、本発明の樹脂組成物を得た（複合化第2段階）。

【0080】比較例1～5

表1に示す熱可塑性樹脂Aと、導電性フィラーaとを、所定の組成比で、実施例1～4 2の複合化第1段階と同様の方法でペレット化し、混練樹脂を得た。

【0081】その後、複合化第1段階で得られた混練樹脂と、熱可塑性樹脂Bとを、所定の組成比でプリブレンドし、該プリブレンド調製品を、複合化第1段階と同様に、加熱溶融混練し、水冷、または空冷後、ペレタイザーによりストランドを切断してペレット化した。ストランド化が困難であったものについては、ストランド断片を粉碎して、混練樹脂を得た。（複合化第2段階）

表2に、実施例1～6 7及び比較例1～5で得られた本発明品及び比較品の評価結果を示す。なお、表2中、Eは指数を示し、例えば10E15は10¹⁵を示す。

【0082】<シールド効果評価方法について>得られた本発明品及び比較品に対し、水分除去のために予備乾燥を行い、射出成形機またはプレス成形機を用いて、150mm×150mm×5mmの平板状試験片を作成した。

【0083】この試験片について、アドバンテスト社製電磁波シールド材評価システムを用いて、近接界における電界強度の減衰率（シールド効果）を測定した。

【0084】材料の電磁波遮蔽性能を評価する方法は種々提案されているが、人工的な放射電磁波の減衰程度を評価する、いわゆるシールド効果（SE）の値が指標として広く用いられている。

【0085】<体積抵抗率評価方法について>得られた本発明品及び比較品に対し、水分除去のために予備乾燥を行い、射出成形機またはプレス成形機を用いて、Φ100mm×1.6mmの円板状試験片、または150mm×130mm×5mmの平板状試験片を作成した。

【0086】この試験片について、JIS K6911に準拠し、アドバンテスト社製デジタル超高速抵抗／微少電流計またはデジタル・マルチメーターを用いて体積抵抗率を測定した。

【0087】<成形性の評価について>樹脂組成物の、2軸混練押出機による最終段階の製造において、定量フィーダーからの投入量が、50Kg/h以上で良好なペレットを得ることか可能なものを◎、30Kg/h以上で良好なペレットを得ることが可能なものを○、20Kg/h以上で良好なペレットを得ることが可能なものを△、ペレット化、或いはストランド化が困難なものを×とした。

【0088】<成形品外観評価について>体積抵抗率評価用試験片について、表面に凹凸、そり、色むら等が見られないものを○、わずかながら色むらが見られるもの△、凹凸、そり等が見られるものを×とした。

【0089】

【表5】

表2

	シールド効果 [dB]	体積抵抗率 [Ωcm]	成形性	成形品外観
実施例1	35	10E16	◎	○
実施例2	34	10E16	◎	○
実施例3	31	10E16	◎	○
実施例4	30	10E15	◎	○
実施例5	30	10E15	◎	○
実施例6	28	10E16	◎	○
実施例7	29	10E15	◎	○
実施例8	28	10E15	◎	○
実施例9	30	10E16	○	○
実施例10	30	10E16	○	○
実施例11	37	10E15	◎	○
実施例12	31	10E15	◎	○
実施例13	33	10E15	◎	○
実施例14	36	10E16	○	○
実施例15	30	10E16	◎	○
実施例16	32	10E16	◎	○
実施例17	30	10E14	◎	○
実施例18	31	10E15	◎	○
実施例19	31	10E16	○	○
実施例20	32	10E16	○	○

【0090】

【表6】

(表2の続き)

実施例21	30	10E14	◎	○
実施例22	28	10E15	○	○
実施例23	34	10E15	◎	○
実施例24	31	10E16	○	○
実施例25	33	10E15	◎	○
実施例26	35	10E15	◎	○
実施例27	29	10E16	◎	○
実施例28	31	10E15	◎	○
実施例29	29	10E16	◎	○
実施例30	32	10E16	◎	○
実施例31	29	10E15	◎	○
実施例32	29	10E15	◎	○
実施例33	30	10E15	◎	○
実施例34	33	10E16	◎	○
実施例35	27	10E16	◎	○
実施例36	28	10E14	◎	○
実施例37	34	10E15	○	○
実施例38	30	10E15	○	○
実施例39	34	10E14	◎	○
実施例40	33	10E15	○	○

【0091】

【表7】

(表2の続き)

実施例41	31	10E14	○	○
実施例42	31	10E15	○	○
実施例43	36	10E14	◎	○
実施例44	34	10E13	○	○
実施例45	31	10E14	○	○
実施例46	35	10E15	○	○
実施例47	32	10E15	◎	○
実施例48	28	10E16	○	○
実施例49	32	10E14	◎	○
実施例50	32	10E15	○	○
実施例51	34	10E14	◎	○
実施例52	33	10E14	○	○
実施例53	30	10E15	○	○
実施例54	32	10E14	○	○
実施例55	34	10E14	◎	○
実施例56	32	10E15	◎	○
実施例57	35	10E15	◎	○
実施例58	35	10E14	◎	○
実施例59	32	10E14	○	○
実施例60	33	10E15	◎	○

【0092】

【表8】

(表2の続き)

実施例61	33	10E16	◎	○
実施例62	34	10E14	○	○
実施例63	31	10E14	○	○
実施例64	34	10E16	◎	○
実施例65	32	10E15	○	○
実施例66	30	10E15	○	○
実施例67	33	10E15	◎	○
比較例1	49	10E6	○	△
比較例2	48	10E5	△	×
比較例3	52	10E6	○	△
比較例4	49	10E5	△	×
比較例5	48	10E6	△	×

実施例12及び比較例3に於いて製造した本発明品及び比較品のSEM写真を、図1及び図2に示す。倍率は5000倍である。

【0093】

【発明の効果】本発明の電磁波遮蔽性樹脂組成物は、少なくとも2種の熱可塑性樹脂および少なくとも1種の導電性フィラーにより海一島構造を形成すると共に、不連続な島相に導電性フィラーを偏在させる構成とすることにより、優れた成形加工性を付与でき、高度な表面平滑性を要求される精密成形品を得ることができる。更に、導電性フィラーが高密度に偏在することから電磁波遮蔽性能に優れ、EMC (Electro-magnetic Compatibility) 対応材料として、電気通信機器システム、デバイス等からの不要電磁波の発生を抑え、または外来る不要電磁波から電気通信機器システム、デバイス等を保護する機能を発揮でき、電気

通信機器等の筐体をはじめとし、コネクター、ICパッケージ等における電磁波遮蔽性を要求される部位に好適に用いることが出来る。

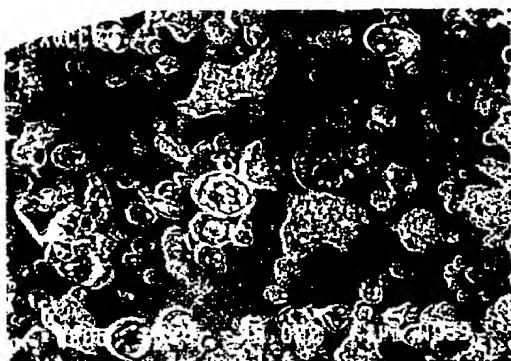
【0094】また更に、本発明の電磁波遮蔽性樹脂組成物の体積抵抗率の値は、絶縁性の領域であるので、電磁波遮蔽性を要求される製品部位と、絶縁性を要求される製品部位に対して、本発明の樹脂組成物を用いた一体成形品を組み込むことも可能で、これにより製品製造の簡略化、製造コストの低減などを図れる等の利点を有する。

【図面の簡単な説明】

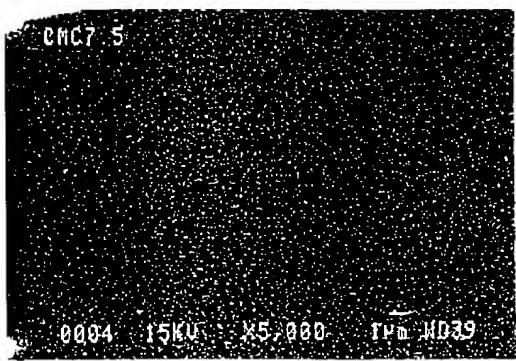
【図1】本発明電磁波遮蔽性樹脂組成物の断面構造の一例を示す実施例12の図面代用顕微鏡写真である。

【図2】比較品樹脂組成物の断面構造の一例を示す比較例3の図面代用顕微鏡写真である。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 木村 孝夫
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内
(72)発明者 岩船 聖敏
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内

(72)発明者 金児 洋明
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内
(72)発明者 上山 宏輝
埼玉県幸手市権現堂1134-2 株式会社コ
スモ総合研究所研究開発センター内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.